

明 細 書

潤滑油添加剤及び潤滑油組成物

技術分野

本発明は、潤滑油添加剤及び潤滑油組成物に関し、さらに詳しくは、特に高い湿式摩擦材トルク容量と良好な μ （摩擦係数）－ V （すべり速度）特性を有する自動変速機油や無段変速機油などの潤滑油組成物を与える潤滑油添加剤、及びこの潤滑油添加剤を含む上記性状を有する潤滑油組成物に関する。

背景技術

近年、地球規模の環境問題を背景に二酸化炭素排出量の低減を目的として、自動車の省燃費化に対する要求はますます高くなっている。

その中で、変速機にも従来に増して動力伝達効率の向上が求められており、その重要な構成要素である潤滑油にも高トルク容量化が求められている。

一方、動力伝達効率向上の一手段として、近年自動車の自動変速機、無段変速機に燃費向上に有効なロックアップクラッチが採用されるようになってきた。

この機構の下では、変速機はトルクコンバーターに内蔵されている。

ロックアップクラッチの機能は走行条件に応じてエンジンの駆動力を直接変速機に伝達し、トルクコンバーター駆動と直接駆動の切替えを適当なタイミングで行うことによりトルクコンバーターの効率を向上させることである。

従来、自動変速機用潤滑油、無段変速機用潤滑油には摩擦調整剤として

リン酸エステル、脂肪酸エステル、脂肪酸アミド等を用いることが提案されている。

しかしながら、このような摩擦調整剤の配合は、ロックアップクラッチ部の低速滑り領域の摩擦係数を低下させ、また湿式クラッチの摩擦係数を大幅に低下させ、伝達トルク容量を確保できなくなる難点があった。

そのため、伝達トルク容量を高くすることを目的に、カルシウムスルフォネート等の金属系清浄剤を配合していた。

しかし、これらの添加により、長時間の使用による摩擦材の目詰まりが生じ、それに伴う摩擦係数の低下やロックアップクラッチ部の $\mu-V$ 特性の悪化など摩擦特性が悪化するという問題があった。

このような問題に対処するために、例えば、低速域でシャッター振動防止性を維持し、湿式クラッチの高トルク容量と良好な変速特性を示すとして、炭素数8～30の炭化水素基を有するビスイミド及びモノイミドを含む潤滑油組成物が開示されている（例えば、特開2002-105478号公報参照）。

また、低速域でシャッター振動防止性を維持し、クラッチの剥離を防止するとして、炭素数8～30の炭化水素基を有するビスイミド化合物とホウ素変性された無灰分散剤を含む潤滑油組成物が開示されている（例えば、特開2001-288489号公報参照）。

しかしながら、これらの潤滑油組成物では、十分なトルク容量が確保できないという問題があった。

以上の背景を踏まえ、自動変速機油、無段変速機油に対して、金属分を含まない、あるいは金属分の含有量を低くしながら、要求される湿式摩擦材の摩擦特性を満足させる技術、特に湿式クラッチの摩擦係数を高くする技術の開発が求められている。

本発明は、このような状況下でなされた、特に高い湿式摩擦材トルク容

量と良好な μ -V特性を有する自動変速機油や無段変速機油などの潤滑油組成物を与える潤滑油添加剤、及びこの潤滑油添加剤を含む上記性状を有する潤滑油組成物を提供することを目的とするものである。

発明の開示

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、コハク酸イミド化合物とリン原子含有化合物との反応生成物が、潤滑油添加剤として、その目的に適合し得ることを見出した。

本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、

- (1) コハク酸イミド化合物とリン原子含有化合物との反応生成物からなる潤滑油添加剤、
- (2) リン原子含有化合物が、硫化リン、リン硫化された炭化水素化合物、リン酸エステル類、亜リン酸エステル類及びジチオリン酸エステル類の中から選ばれる少なくとも一種である上記(1)の潤滑油添加剤、
- (3) リン硫化された炭化水素化合物が、リン原子に2個のアルキル基が結合した構造を有する上記(2)の潤滑油添加剤、
- (4) リン酸エステル類、亜リン酸エステル類、ジチオリン酸エステル類が、それぞれジエステルである上記(2)の潤滑油添加剤、
- (5) リン原子含有化合物に導入されているアルキル基が、エーテル結合及び／又はチオエーテル結合を有していてもよい炭素数2～25のアルキル基である上記(2)～(4)のいずれかの潤滑油添加剤、
- (6) 鉱油及び／又は合成系基油と、上記(1)～(5)のいずれかの潤滑油添加剤を含むことを特徴とする潤滑油組成物、
- (7) 湿式クラッチ又は湿式ブレーキを有する変速機用である上記(6)の潤滑油組成物、及び

(8) 自動変速機油又は無段変速機油である上記(6)の潤滑油組成物を提供するものである。

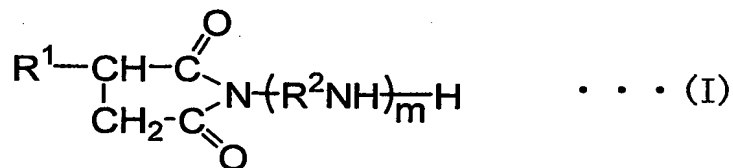
本発明によれば、特に高い湿式摩擦材トルク容量と良好な $\mu-V$ 特性を有する自動変速機油や無段変速機油などの潤滑油組成物を与える潤滑油添加剤、及びこの潤滑油添加剤を含む上記性状を有する潤滑油組成物を提供することができる。

発明を実施するための最良の形態

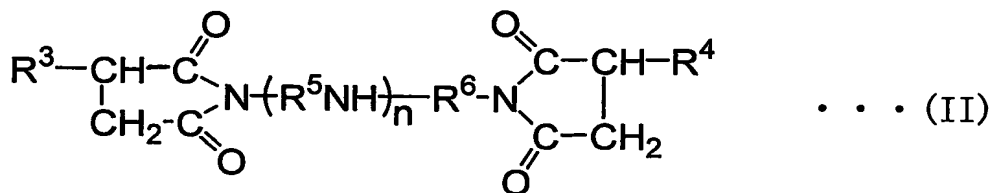
本発明の潤滑油添加剤は、(A) コハク酸イミド化合物と (B) リン原子含有化合物との反応生成物である。

本発明の潤滑油添加剤において、(A) 原料として用いられるコハク酸イミド化合物は、非ホウ素系コハク酸イミド化合物及びホウ素系コハク酸イミド化合物のいずれであってもよい。

前記非ホウ素系コハク酸イミド化合物としては、例えば、一般式 (I)



や、一般式 (II)



で表されるコハク酸イミドを挙げることができる。

上記一般式 (I) 及び (II) において、 R^1 、 R^3 はそれぞれ炭素数 5 ～ 350 のアルキル基若しくはアルケニル基であり、 R^4 は水素または炭素数 5 ～ 350 のアルキル基若しくはアルケニル基である。

R^3 及び R^4 はたがいにより同一でも異なってもよい。

また、 R^2 、 R^5 及び R^6 はそれぞれ 2 価の有機基であり、 R^5 及び R^6 はたがいにより同一でも異なってもよい。

m は 1 ～ 10 の整数、 n は 0 又は 1 ～ 10 の整数である。

上記アルキル基もしくはアルケニル基としては、ポリアルケニル基が好ましく、特にポリブテニル基あるいはポリイソブテニル基が好適である。

この一般式 (I)、(II) で表されるコハク酸イミドは、アルケニル若しくはアルキルコハク酸、又はアルケニル若しくはアルキル無水コハク酸と対応するアミン類とを反応させることにより、製造することができる。

ここで、アミン類としては、例えば、エチレンジアミン、プロパンジアミン、ブタンジアミン、N-メチル-1, 3-プロパンジアミン、N, N-ジメチル-1, 3-プロパンジアミン、及びジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、アミノエチルピペラジン、テトラエチレンペンタミン等のポリアルキレンポリアミン等を挙げることができる。

また、ホウ素系コハク酸イミド化合物は、前記の非ホウ素系コハク酸イミド化合物に、ホウ素含有化合物を、通常 50 ～ 250℃、好ましくは 100 ～ 200℃ の温度で反応させることにより、得ることができる。

上記ホウ素含有化合物としては、酸化ホウ素、ハロゲン化ホウ素、ホウ酸、ホウ酸無水物、ホウ酸エステルなどの中から選ばれる少なくとも一種を用いることができる。

本発明においては、(A) 原料として、前記コハク酸イミド化合物を一種用いてもよく、二種以上組み合わせて用いてもよい。

一方、(B) 原料として用いられるリン原子含有化合物としては、硫化リン、リン硫化された炭化水素化合物、リン酸エステル類、亜リン酸エステル類、ジチオリン酸エステル類などを挙げることができる。

これらのリン原子含有化合物に導入されているアルキル基は、直鎖状、

分岐状のいずれであつてもよいし、環状構造を含んでいてもよく、また、エーテル結合及び／又はチオエーテル結合を有していてもよい。

前記硫化リンとしては、 P_2S_3 、 P_2S_5 、 P_4S_7 、 P_4S_{10} などが挙げられるが、 P_2S_5 が好ましい。

前記リン硫化された炭化水素化合物としては、様々なものがあるが、リン原子に２個のアルキル基が結合した構造を有するものが好ましい。

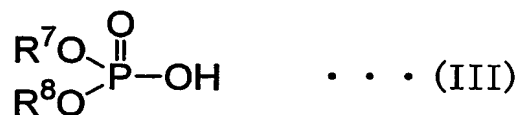
このような化合物としては、オレフィンと硫化リンとの反応生成物を挙げることができる。

例えば、オレフィンとして、プロピレン、ブテン、イソブチレン又はこれらの（共）重合体、デセン、セテン、オクタデセン、テルペン類（ピネンなど）、ビニルノルボルネン、カンフェンなどを、硫化リンとして P_2S_3 、 P_2S_5 、 P_4S_7 、 P_4S_{10} などを用い、これらを $100\sim 300^\circ\text{C}$ 程度の温度にて、窒素ガス気流中で反応させることによって、リン硫化された炭化水素化合物を得ることができる。

ここで、原料として特に望ましいオレフィンは α -ピネンであり、また好ましい硫化リンは P_2S_5 である。

また、前記リン酸エステル類、亜リン酸エステル類、ジチオリン酸エステル類としては、それぞれジエステルが好ましい。

ここで、リン酸エステル類としては、例えば一般式（III）



で表される酸性リン酸エステルを好ましく挙げることができる。

上記一般式（III）において、 R^7 及び R^8 は、それぞれ炭素数 $1\sim 20$ の炭化水素基であり、具体的には炭素数 $1\sim 20$ の直鎖状若しくは分岐状のアルキル基、炭素数 $3\sim 20$ のシクロアルキル基、炭素数 $2\sim 20$ の直鎖状若しくは分岐状のアルケニル基、炭素数 $6\sim 20$ のアリール基又は炭

炭素数 7 ～ 20 のアラルキル基が挙げられる。

炭素数 1 ～ 20 のアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、2-エチルヘキシル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基、エイコシル基などが挙げられる。

炭素数 3 ～ 20 のシクロアルキル基の例としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、メチルシクロヘキシル基、シクロオクチル基などが挙げられる。

炭素数 2 ～ 20 のアルケニル基の例としては、アリル基、プロペニル基、ブテニル基、オクテニル基、デセニル基、オレイル基などが挙げられる。

炭素数 6 ～ 20 のアリール基の例としては、フェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基などが挙げられ、炭素数 7 ～ 20 のアラルキル基の例としては、ベンジル基、フェネチル基、ナフチルメチル基などが挙げられる。

また、この炭素数 1 ～ 20 の炭化水素基は、一つ以上の酸素原子及び／又は硫黄原子で中断されていてもよい。

すなわち、主鎖中に一つ以上のエーテル結合又はチオエーテル結合あるいはその両方を含んでいてもよい。

このような炭化水素基の例としては、ヘキシルオキシメチル基、ヘキシルオキシエチル基、オクチルオキシメチル基、オクチルオキシエチル基、ドデシルオキシメチル基、ドデシルオキシエチル基、ヘキサデシルオキシメチル基、ヘキサデシルオキシエチル基、ヘキシルチオメチル基、ヘキシルチオエチル基、オクチルチオメチル基、オクチルチオエチル基、ドデシルチオメチル基、ドデシルチオエチル基、ヘキサデシルチオメチル基、ヘキサデシルチオエチル基などが挙げられる。

前記一般式 (III) で表される酸性リン酸エステルとしては、例えば、ジヘキシルホスフェート、ジオクチルホスフェート、ジ (2-エチルヘキシル) ホスフェート、ジドデシルホスフェート、ジヘキサデシルホスフェート、ジ (ヘキシルチオエチル) ホスフェート、ジ (オクチルチオエチル) ホスフェート、ジ (ドデシルチオエチル) ホスフェート、ジ (ヘキサデシルチオエチル) ホスフェート、ジオクテニルホスフェート、ジオレイルホスフェート、ジシクロヘキシルホスフェート、ジフェニルホスフェート、ジトリルホスフェート、ジベンジルホスフェート、ジフェネチルホスフェートなどが挙げられる。

また、亜リン酸エステル類としては、例えば一般式 (IV)



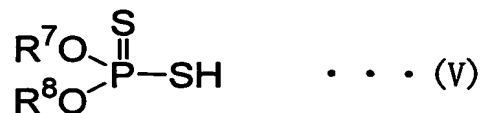
で表される酸性亜リン酸エステルを好ましく挙げることができる。

上記一般式 (IV) において、 R^7 及び R^8 は前記で説明したとおりである。

この一般式 (IV) で表される酸性亜リン酸エステルとしては、例えば、ジヘキシルハイドロジェンホスファイト、ジオクチルハイドロジェンホスファイト、ジ (2-エチルヘキシル) ハイドロジェンホスファイト、ジドデシルハイドロジェンホスファイト、ジヘキサデシルハイドロジェンホスファイト、ジ (ヘキシルチオエチル) ハイドロジェンホスファイト、ジ (オクチルチオエチル) ハイドロジェンホスファイト、ジ (ドデシルチオエチル) ハイドロジェンホスファイト、ジ (ヘキサデシルチオエチル) ハイドロジェンホスファイト、ジオクテニルハイドロジェンホスファイト、ジオレイルハイドロジェンホスファイト、ジシクロヘキシルハイドロジェンホスファイト、ジフェニルハイドロジェンホスファイト、ジトリルハイドロジェンホスファイト、ジベンジルハイドロジェンホスファイト、ジフ

エネチルハイドロジェンホスファイトなどが挙げられる。

さらに、ジチオリン酸エステル類としては、例えば、一般式 (V)



で表されるジチオリン酸エステルを好ましく挙げることができる。

上記一般式 (V) において、 R^7 及び R^8 は前記で説明したとおりである。

この一般式 (V) で表されるジチオリン酸エステルとしては、例えばジヘキシルジチオリン酸、ジオクチルジチオリン酸、ジ(2-エチルヘキシル)ジチオリン酸、ジドデシルジチオリン酸、ジヘキサデシルジチオリン酸、ジ(ヘキシルチオエチル)ジチオリン酸、ジ(オクチルチオエチル)ジチオリン酸、ジ(ドデシルチオエチル)ジチオリン酸、ジ(ヘキサデシルチオエチル)ジチオリン酸、ジオクテニルジチオリン酸、ジオレイルジチオリン酸、ジシクロヘキシルジチオリン酸、ジフェニルジチオリン酸、ジトリルジチオリン酸、ジベンジルジチオリン酸、ジフェネチルジチオリン酸などが挙げられる。

本発明においては、(B) 原料として、前記リン原子含有化合物を一種用いてもよく、二種以上組み合わせて用いてもよい。

本発明の潤滑油添加剤は、前記の (A) 原料と (B) 原料とを、モル比で、好ましくは 1 : 10 ~ 10 : 1、より好ましくは 1 : 3 ~ 3 : 1 の割合で反応させて得られる反応生成物であり、(A) 原料と (B) 原料とを、上記範囲の割合で用いることにより、所望の性能を有する潤滑油添加剤を得ることができる。

この反応は、通常 50 ~ 250℃ 程度、好ましくは 100 ~ 200℃ の範囲の温度で行われる。

また、この際、必要に応じ、炭化水素化合物などの有機溶剤を用いるこ

とができる。

このようにして得られた本発明の潤滑油添加剤は、特に高い湿式摩擦材トルク容量と良好な μ -V特性を有する自動変速機油や無段変速機油などの潤滑油組成物を与えることができる。

本発明の潤滑油組成物は、鉱油及び／又は合成系基油と、前述の本発明の潤滑油添加剤を含むものであり、該潤滑油添加剤の含有量は、前記効果を有効に発揮し得る点から、0.01～50質量%の範囲が好ましく、さらに0.1～20質量%の範囲が好ましい。

本発明の組成物の基油としては、鉱油および合成油のいずれをも使用することができる。

ここで、鉱油としては、従来公知の種々のものが使用可能であり、例えば、パラフィン系鉱油、中間系鉱油、ナフテン系鉱油などが挙げられ、具体例としては、溶剤精製または水素精製による軽質ニュートラル油、中質ニュートラル油、重質ニュートラル油又はブライトストックなどを挙げることができる。

また、合成油としては、やはり従来公知の種々のものが使用可能であり、例えば、ポリ α -オレフィン(α -オレフィン共重合体を含む)、ポリブテン、ポリオールエステル、二塩基酸エステル、リン酸エステル、ポリフェニルエーテル、アルキルベンゼン、アルキルナフタレン、ポリオキシアルキレングリコール、ネオペンチルグリコール、シリコンオイル、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、更にはヒンダードエステルなどを用いることができる。

これらの基油は、単独で、あるいは二種以上組み合わせて使用することができ、鉱油と合成油とを組み合わせて使用してもよい。

上記基油としては、100℃における動粘度が1～30 mm²/sであると共に%CAが20%以下であるものが好ましい。

該動粘度が上記範囲にあれば、自動変速機のギヤ軸受けやクラッチなどの摺動部における摩擦を十分に低減し得ると共に、低温特性も良好となる。

該動粘度は、 100°C で $2\sim 20\text{ mm}^2/\text{s}$ がより好ましく、 $3\sim 10\text{ mm}^2/\text{s}$ であることが特に好ましい。

$\%C_A$ が 20% 以下であると低温特性が良好であり、特に、 $\%C_A$ が 10% 以下が好ましい。

本発明の潤滑油組成物においては、その性能をさらに向上させる目的で、必要に応じて、さらに本発明の潤滑油添加剤以外の無灰分散剤、金属系清浄剤、摩擦調整剤、粘度指数向上剤、極圧添加剤、酸化防止剤、腐食防止剤、消泡剤、着色剤等に代表される各種添加剤を単独で、又は数種組み合わせ合わせて配合してもよく、本発明の潤滑油添加剤はこれらの効果を阻害するものではない。

このようにして調製された本発明の潤滑油組成物は、高い湿式摩擦材トルク容量と良好な $\mu-V$ 特性を有する自動変速機油や無段変速機油として好適であり、また湿式クラッチ、湿式ブレーキを有する変速機を備えた建設機械や農機、手動変速機、二輪車ガソリンエンジン、ディーゼルエンジン、ガスエンジン、ショックアブソーバー油等の潤滑油として用いることができる。

次に、本発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

なお、各例における潤滑油組成物の性能は、以下に示す方法に従って評価した。

(1) 湿式摩擦材トルク容量及び $\mu-V$ 特性の評価

低速滑り試験機を用い、下記の試験条件で試験を実施し、湿式摩擦材トルク容量を 250 rpm における摩擦係数(μ_{250})により評価し、 $\mu-V$ 特性を μ 比(μ_{50}/μ_1)の値で評価した。

上記 μ 250 の値が高いほど高トルク容量であることを示し、 μ 50 / μ 1 の値が 1 より大きければ可とする。

μ 1 は 1 r p m における摩擦係数を示し、 μ 50 は 50 r p m における摩擦係数を示す。

<試験条件>

- ・摩擦材 : 市販セルローズ系湿式ペーパー材, スチールプレート
- ・試験温度 : 120℃
- ・面圧 : 0.98 MPa
- ・測定 : 1 ~ 300 r p m, ステップ

実施例 1

(1) 潤滑油添加剤の製造

500 ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド (モノタイプ、アルキル基: 平均分子量 960 のポリブテン、ホウ素含有量: 1.0 質量%、以下、特別の記載がなければ、同一のコハク酸イミドを使用した。) 0.12 モルとジオレイルハイドロジェンホスファイト 0.17 モルを入れ、窒素気流下 150℃ で 6 時間反応させた。副生する水を 150℃ で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとジオレイルハイドロジェンホスファイトとの反応生成物である潤滑油添加剤 a を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 a 由来の窒素の配合量が 1500 質量 p p m となるように、該鉱物油 87.8 質量% と潤滑油添加剤 a 12.2 質量% を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 2

(1) 潤滑油添加剤の製造

実施例 1 (1) において、ジオレイルヒドロジェンホスファイトの代わりに、ジ(2-エチルヘキシル)ヒドロジェンホスファイトを用いた以外は、実施例 1 (1) と同様にして潤滑油添加剤 b を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 b 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるように、該鉱物油 91.7 質量%と潤滑油添加剤 b 8.3 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 3

(1) 潤滑油添加剤の製造

実施例 1 (1) において、ジオレイルヒドロジェンホスファイトの代わりに、ジ(オクチルチオエチル)ヒドロジェンホスファイトを用いた以外は、実施例 1 (1) と同様にして潤滑油添加剤 c を製造した。

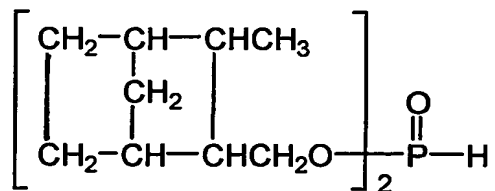
(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 c 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるように、該鉱物油 90.0 質量%と潤滑油添加剤 c 10.0 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 4

(1) 潤滑油添加剤の製造

実施例 1、(1) において、ジオレイルヒドロジェンホスファイトの代わりに、下記の式



で表されるリン系化合物を用いた以外は、実施例 1 (1) と同様にして潤滑油添加剤 d を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 d 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるように、該鉱物油 90.6 質量%と潤滑油添加剤 d 9.4 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 5

(1) 潤滑油添加剤の製造

500 ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド (ホウ素含有量 0.4 質量%) 0.12 モルとリン硫化されたピネン 0.06 モルを入れ、窒素気流下 170℃で 8 時間反応させた。副生する硫化水素を 150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤 e を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 e 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるように、該鉱物油 89.7 質量%と潤滑油添加剤 d 10.3 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 6

(1) 潤滑油添加剤の製造

実施例 5 (1) において、リン硫化されたピネンの代わりに、ジ (2-エチルヘキシル) ジチオリン酸を用いた以外は、実施例 5 (1) と同様にして潤滑油添加剤 f を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として150ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記(1)で得られた潤滑油添加剤f由来の窒素の配合量が1500質量ppmとなるように、該鉱物油92.1質量%と潤滑油添加剤f7.9質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第1表に示す。

実施例7

(1) 潤滑油添加剤の製造

500ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド(ホウ素含有量1.0質量%)0.12モルと五硫化二リン0.04モルを入れ、窒素気流下170℃で8時間反応させた。副生する硫化水素を150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドと五硫化二リンとの反応生成物である潤滑油添加剤gを製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として150ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記(1)で得られた潤滑油添加剤g由来の窒素の配合量が1500質量ppmとなるように、該鉱物油91.2質量%と潤滑油添加剤g8.8質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第1表に示す。

実施例8

(1) 潤滑油添加剤の製造

実施例5(1)において、ホウ素化コハク酸イミド(ホウ素含有量0.4質量%)の代わりに、ホウ素化コハク酸イミド(ホウ素含有量0.6質量%)を用いた以外は、実施例5(1)と同様にして潤滑油添加剤hを製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として150ニュートラル相当の鉱物油を使用し、上記(1)で得られた潤滑油添加剤h由来の窒素の配合量が1500質量ppmとなるよ

うに、該鉍物油 9 2. 5 質量%と潤滑油添加剤 h 7. 5 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 9

(1) 潤滑油添加剤の製造

200 ミリリットルのセパラブルフラスコに、市販ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量 2. 0 質量%）50 グラムとリン硫化されたピネン 5. 5 グラムを入れ、窒素気流下 170℃で 8 時間反応させた。

副生する硫化水素を 150℃で減圧除去することにより、潤滑油添加剤 i を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉍物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 i 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるように、該鉍物油 9 3. 2 質量%と潤滑油添加剤 i 6. 8 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 10

(1) 潤滑油添加剤の製造

300 ミリリットルの 4 つ口フラスコに、ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量 1. 0 質量%）0. 035 モルのキシレン（70 ミリリットル）溶液を調製し、これに窒素気流下 100℃で五硫化二リン 0. 023 モルのキシレン（70 ミリリットル）溶液を加えた。

160℃還流下、6 時間反応させた後、キシレンを留去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドと五硫化二リンとの反応生成物である潤滑油添加剤 j を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉍物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 j 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるよ

うに、該鉍物油 92.5 質量%と潤滑油添加剤 j 7.5 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

実施例 11

(1) 潤滑油添加剤の製造

実施例 10 (1) において、ホウ素化コハク酸イミド (ホウ素含有量 1.0 質量%) の代わりに、ホウ素化コハク酸イミド (ホウ素含有量 0.6 質量%) を用いた以外は、実施例 10 (1) と同様にして潤滑油添加剤 k を製造した。

(2) 潤滑油組成物の調製、性能評価

基油として 150 ニュートラル相当の鉍物油を使用し、上記 (1) で得られた潤滑油添加剤 k 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるように、該鉍物油 92.1 質量%と潤滑油添加剤 k 7.9 質量%を含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 1 表に示す。

第 1 表

| | 潤滑油組成物 | | | 性能評価 | |
|-------|-------------|--------|-------|-----------------------|----------------------------------|
| | 鉱油 (質量%) | 潤滑油添加剤 | | トルク容量 [μ 250] | μ 比 [μ 50 / μ 1] |
| | | 種類 | (質量%) | | |
| 実施例1 | 87.8 | a | 12.2 | 0.164 | 1.293 |
| 実施例2 | 91.7 | b | 8.3 | 0.173 | 1.219 |
| 実施例3 | 90.0 | c | 10.0 | 0.163 | 1.197 |
| 実施例4 | 90.6 | d | 9.4 | 0.166 | 1.197 |
| 実施例5 | 89.7 | e | 10.3 | 0.188 | 1.105 |
| 実施例6 | 92.1 | f | 7.9 | 0.176 | 1.267 |
| 実施例7 | 91.2 | g | 8.8 | 0.180 | 1.128 |
| 実施例8 | 92.5 | h | 7.5 | 0.190 | 1.108 |
| 実施例9 | 93.2 | i | 6.8 | 0.186 | 1.046 |
| 実施例10 | 92.5 | j | 7.5 | 0.193 | 1.066 |
| 実施例11 | 92.1 | k | 7.9 | 0.183 | 1.058 |

比較例 1 ～ 5

基油として 150 ニュートラル相当の鉱物油を、潤滑油添加剤として第 2 表に示す添加剤 1 又は添加剤 1 と添加剤 2 を用い、それらを添加剤 1 由来の窒素の配合量が 1500 質量 ppm となるように、第 3 表に示す割合で含む潤滑油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第 3 表に示す。

第 2 表

| | 添加剤 1 | 添加剤 2 |
|-------|---------------------------------|------------------------|
| 比較例 1 | モノコハク酸イミド | — |
| 比較例 2 | ビスコハク酸イミド | — |
| 比較例 3 | ホウ素化コハク酸イミド (ホウ素含有量 2.0 質量%) | — |
| 比較例 4 | ホウ素化コハク酸イミド (ホウ素含有量 1.0 質量%) | ジオレイルハイドロ ジエンホスファイト |
| 比較例 5 | ホウ素化コハク酸イミド (ホウ素含有量 1.0 質量%) | リン硫化されたピネン |

第 3 表

| | 潤滑油組成物 | | | 性能評価 | |
|-------|-------------|----------------|----------------|-----------------------|----------------------------------|
| | 鉱油 (質量%) | 添加剤 1 (質量%) | 添加剤 2 (質量%) | トルク容量 [μ 250] | μ 比 [μ 50 / μ 1] |
| 比較例 1 | 92.0 | 8.0 | — | 0.129 | 0.960 |
| 比較例 2 | 84.7 | 15.3 | — | 0.114 | 0.925 |
| 比較例 3 | 93.2 | 6.8 | — | 0.155 | 0.966 |
| 比較例 4 | 89.9 | 7.5 | 2.6 | 0.147 | 1.545 |
| 比較例 5 | 91.7 | 7.5 | 0.8 | 0.159 | 1.067 |

以上の結果から明らかなように、本発明の潤滑油添加剤を含む実施例 1～11 の潤滑油組成物は、いずれも伝達トルク容量を高く保持すると共に、 μ 比 (μ 50 / μ 1) が 1 より大きい。

これに対し、イミド系分散剤のみを含む潤滑油組成物（比較例 1 ～ 3）は、伝達トルク容量が不十分であり、さらに μ 比が 1 未満である。

また、ホウ素化イミドとリン系化合物を反応させずに、それぞれを含む潤滑油組成物（比較例 4、5）は、伝達トルク容量が不十分である。

（2）自動変速機油組成物としての評価（LVFA）

実施例 1 ～ 11 において、最も高い μ d 値を得たホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤について、自動変速機油組成物としての性能を確認することを目的に、表 4 に示す各種添加剤（ポリメタクリレート、カルシウムスルホネート、イソステアリン酸アミド及びオレイルグリセライド：数字は質量％）を配合した自動変速機油組成物を調製し、評価した。

また、その他の添加剤として、フェノール系酸化防止剤が 30 質量部、アミン系酸化防止剤が 30 質量部、硫黄系酸化防止剤が 30 質量部、チアジアゾール系銅不活性化剤が 3 質量部、シリコーン系消泡剤が 10 質量部の混合物 1.1 質量％を自動変速機油組成物に配合した。

尚、自動変速機油組成物には、基油として、60 ニュートラル相当の鉱物油が 12.5 質量％、残部が 100 ニュートラル相当の鉱物油となるように調製した混合物を配合した。

実施例 12

（1）潤滑油添加剤の製造

500 ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量 0.4 質量％）0.12 モルとリン硫化されたピネン 0.06 モルを入れ、窒素気流下 170℃ で 8 時間反応させた。副生する硫化水素を 150℃ で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤 1 を製造した。

(2) 性能評価

上記(1)で得られた潤滑油添加剤1由来の窒素の配合量が1500質量ppmとなるように、潤滑油添加剤1を含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

実施例13

(1) 潤滑油添加剤の製造

200ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド(ホウ素含有量0.6質量%)0.06モルとリン硫化されたピネン0.03モルを入れ、窒素気流下170℃で8時間反応させた。副生する硫化水素を150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤mを製造した。

(2) 性能評価

上記(1)で得られた潤滑油添加剤m由来の窒素の配合量が1500質量ppmとなるように、潤滑油添加剤mを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

実施例14

(1) 潤滑油添加剤の製造

実施例13(1)において、ホウ素化コハク酸イミド(ホウ素含有量0.6質量%)の代わりに、ホウ素化コハク酸イミド(ホウ素含有量1.0質量%)を用いた以外は、実施例13(1)と同様にして潤滑油添加剤nを製造した。

(2) 性能評価

上記(1)で得られた潤滑油添加剤n由来の窒素の配合量が1500質量ppmとなるように、潤滑油添加剤nを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

実施例 1 5

(1) 潤滑油添加剤の製造

200ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量3.0質量%）0.031モルとリン硫化されたピネン0.023モルを入れ、窒素気流下180℃で6時間反応させた。副生する硫化水素を150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤oを製造した。

(2) 性能評価

上記(1)で得られた潤滑油添加剤o由来の窒素の配合量が750質量ppmとなるように、潤滑油添加剤oを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

実施例 1 6

(1) 潤滑油添加剤の製造

200ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量2.8質量%）0.033モルとリン硫化されたピネン0.020モルを入れ、窒素気流下180℃で6時間反応させた。副生する硫化水素を150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤pを製造した。

(2) 性能評価

上記(1)で得られた潤滑油添加剤p由来の窒素の配合量が750質量ppmとなるように、潤滑油添加剤pを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

実施例 1 7

(1) 潤滑油添加剤の製造

200ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量2.0質量%）0.034モルとリン硫化されたピネン0.017モルを入れ、窒素気流下180℃で6時間反応させた。副生する硫化水素を150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤qを製造した。

（2）性能評価

上記（1）で得られた潤滑油添加剤q由来の窒素の配合量が750質量ppmとなるように、潤滑油添加剤qを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

実施例18

（1）潤滑油添加剤の製造

200ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量2.0質量%）0.033モルとリン硫化されたピネン0.020モルを入れ、窒素気流下180℃で6時間反応させた。副生する硫化水素を150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤rを製造した。

（2）性能評価

上記（1）で得られた潤滑油添加剤r由来の窒素の配合量が750質量ppmとなるように、潤滑油添加剤rを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

実施例19

（1）潤滑油添加剤の製造

200ミリリットルのセパラブルフラスコに、ホウ素化コハク酸イミド（ホウ素含有量2.4質量%）0.034モルとリン硫化されたピネン0.

0.17モルを入れ、窒素気流下180℃で6時間反応させた。副生する硫化水素を150℃で減圧除去した。

このようにして、ホウ素化コハク酸イミドとリン硫化されたピネンとの反応生成物である潤滑油添加剤sを製造した。

(2) 性能評価

上記(1)で得られた潤滑油添加剤s由来の窒素の配合量が750質量ppmとなるように、潤滑油添加剤sを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。結果を第4表に示す。

比較例6

実施例12～19に記載の添加剤の代わりにホウ素化コハク酸イミド、及びリン源としてのトリクレジルホスフェートを含む自動変速機油組成物を調製し、その性能を評価した。

潤滑油組成物中に含まれる窒素の割合は800質量ppmであった。結果を第4表に示す。

第 4 表

| 自動変速機油組成物 | | 実施例 | | | | | | | | | | 比較例 |
|-----------|------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--|-----|
| 基油 | 100 ニュートラル鉱物油 | 12 | 13 | 14 | 15 | 16 | 17 | 18 | 19 | 比較例 | | |
| | 60 ニュートラル鉱物油 | 残部 | 残部 | 残部 | 残部 | 残部 | 残部 | 残部 | 残部 | | | |
| | ポリメタクリレート | 12.5 | 12.5 | 12.5 | 12.5 | 12.5 | 12.5 | 12.5 | 12.5 | 6 | | |
| | カルシウムスルホネート | 8.5 | 8.5 | 8.5 | 8.5 | 8.5 | 8.5 | 8.5 | 8.5 | 残部 | | |
| | イソステアリン酸アミド | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 1.5 | 12.5 | | |
| | オレイルグリセライド | 0.4 | 0.4 | 0.4 | 0.4 | 0.4 | 0.4 | 0.4 | 0.4 | 12.5 | | |
| | ホウ素化イミド | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 0.2 | 8.5 | | |
| | トリクレジルホスフェート | — | — | — | — | — | — | — | — | 1.5 | | |
| | 添加剤 l | 7.9 | — | — | — | — | — | — | — | 0.3 | | |
| | 添加剤 m | — | 7.9 | — | — | — | — | — | — | — | | |
| | 添加剤 n | — | — | 7.9 | — | — | — | — | — | — | | |
| | 添加剤 o | — | — | — | 3.1 | — | — | — | — | — | | |
| | 添加剤 p | — | — | — | — | 3.8 | — | — | — | — | | |
| | 添加剤 q | — | — | — | — | — | 4.7 | — | — | — | | |
| | 添加剤 r | — | — | — | — | — | — | 3.8 | — | — | | |
| | 添加剤 s | — | — | — | — | — | — | — | 4.7 | — | | |
| | その他の添加剤 (*) | 1.1 | 1.1 | 1.1 | 1.1 | 1.1 | 1.1 | 1.1 | 1.1 | 1.1 | | |
| | トルク容量 [μ 250] | 0.156 | 0.174 | 0.167 | 0.166 | 0.169 | 0.170 | 0.170 | 0.173 | 0.146 | | |
| | μ 比 [μ 50 / μ 1] | 1.133 | 1.208 | 1.156 | 1.273 | 1.275 | 1.232 | 1.323 | 1.274 | 1.306 | | |

(*) 酸化防止剤, 銅不活性化剤, 消泡剤を一定割合で配合

産業上の利用可能性

本発明の潤滑油添加剤は、特に高い湿式摩擦材トルク容量と良好な μ -V特性を有する自動変速機油や無段変速機油などの潤滑油組成物を与えることができる。

また、上記潤滑油添加剤を含む本発明の潤滑油組成物は、自動変速機油や無段変速機油として、また湿式クラッチ、湿式ブレーキを有する変速機を備えた建設機械や農機、手動変速機、二輪車ガソリンエンジン、ディーゼルエンジン、ガスエンジン、ショックアブソーバー油等の潤滑油として用いることができる。

請 求 の 範 囲

1. コハク酸イミド化合物とリン原子含有化合物との反応生成物からなる潤滑油添加剤。
2. リン原子含有化合物が、硫化リン、リン硫化された炭化水素化合物、リン酸エステル類、亜リン酸エステル類及びジチオリン酸エステル類の中から選ばれる少なくとも一種である請求項 1 記載の潤滑油添加剤。
3. リン硫化された炭化水素化合物が、リン原子に 2 個のアルキル基が結合した構造を有する請求項 2 記載の潤滑油添加剤。
4. リン酸エステル類、亜リン酸エステル類、ジチオリン酸エステル類が、それぞれジエステルである請求項 2 記載の潤滑油添加剤。
5. リン原子含有化合物に導入されているアルキル基が、エーテル結合及び／又はチオエーテル結合を有していてもよい炭素数 2 ～ 25 のアルキル基である請求項 2 に記載の潤滑油添加剤。
6. 鉱油及び／又は合成系基油と、請求項 1 に記載の潤滑油添加剤を含むことを特徴とする潤滑油組成物。
7. 湿式クラッチ又は湿式ブレーキを有する変速機用である請求項 6 記載の潤滑油組成物。
8. 自動変速機油又は無段変速機油である請求項 6 記載の潤滑油組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014976

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ C10M159/12/(C10M159/12, 125:24, 133:16, 137:00, 139:00),
C10N30:00, 40:04, 60:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ C10M159/12, 125/24, 133/16, 133/56, 137/00-137/16, 139/00,
C10N30:00, 40:04, 60:00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X | JP 2002-105478 A (Nippon Mitsubishi Oil Corp.), 10 April, 2002 (10.04.02), | 1-8 |
| X | JP 2000-109868 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 April, 2000 (18.04.00), | 1-8 |
| X | JP 2000-109870 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd., et al.), 18 April, 2000 (18.04.00), | 1-8 |
| X | JP 2000-109871 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd., et al.), 18 April, 2000 (18.04.00), | 1-8 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
20 December, 2004 (20.12.04)

Date of mailing of the international search report
11 January, 2005 (11.01.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014976

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X | JP 2000-109873 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 18 April, 2000 (18.04.00), | 1-8 |
| X | JP 2000-345181 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd., et al.), 12 December, 2000 (12.12.00), | 1-8 |
| X | JP 1-282296 A (Ethyl Petroleum Additives, Ltd.), 14 November, 1989 (14.11.89), | 1-8 |
| X | JP 2-140299 A (Ethyl Petroleum Additives, Ltd.), 29 May, 1990 (29.05.90), | 1-8 |
| X | JP 2-289691 A (Ethyl Petroleum Additives, Ltd.), 29 November, 1990 (29.11.90), | 1-8 |
| X | JP 4-23892 A (Nippon Oil Co., Ltd.), 28 January, 1992 (28.01.92), | 1-8 |
| X | JP 5-186788 A (Ethyl Petroleum Additives, Ltd.), 27 July, 1993 (27.07.93), | 1-8 |
| X | JP 7-316578 A (Ethyl Corp.), 05 December, 1995 (05.12.95), | 1-8 |
| X | JP 5-98282 A (Ethyl Petroleum Additives, Ltd.), 20 April, 1993 (20.04.93), | 1-8 |
| X | JP 5-263090 A (Ethyl Petroleum Additives, Ltd.), 12 October, 1993 (12.10.93), | 1-8 |
| X | JP 4-342794 A (Ethyl Petroleum Additives, Ltd.), 30 November, 1992 (30.11.92), | 1-8 |
| X | JP 57-61090 A (Shebron Research Co.), 13 April, 1982 (13.04.82), | 1-8 |
| X | JP 2003-520892 A (THE LUBRIZOL CORP.), 08 July, 2003 (08.07.03), | 1-8 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2004/014976

| | | |
|------------------|------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| JP 2002-105478 A | 2002.04.10 | US 2002/0072478 A1 US 2003/0220206 A1 |
| JP 2000-109868 A | 2000.04.18 | (Family: none) |
| JP 2000-109870 A | 2000.04.18 | (Family: none) |
| JP 2000-109871 A | 2000.04.18 | (Family: none) |
| JP 2000-109873 A | 2000.04.18 | (Family: none) |
| JP 2000-345181 A | 2000.12.12 | EP 1057884 A1 US 6303546 B1 |
| JP 1-282296 A | 1989.11.14 | AU 8931109 A CA 1313860 C DE 68900349 T2 EP 333371 A1 US 4855074 A |
| JP 2-140299 A | 1990.05.29 | AU 8942420 A CA 1336184 C DE 68901901 T2 EP 359522 A1 US 4857214 A |
| JP 2-289691 A | 1990.11.29 | AU 9049958 A CA 2009398 A1 DE 69001079 T2 EP 384639 A1 ES 2046688 T3 US 5164103 A US 5198133 A US 5256324 A US 5389273 A US 5439606 A |
| JP 4-23892 A | 1992.01.28 | (Family: none) |
| JP 5-186788 A | 1993.07.27 | CA 2068624 A1 GB 2257158 A US 5817605 A |
| JP 7-316578 A | 1995.12.05 | AU 9520087 A CA 2148975 A1 EP 683220 A2 |
| JP 5-98282 A | 1993.04.20 | AU 9188212 A CA 2056320 A1 DE 69103390 T2 EP 492934 A1 |
| JP 5-263090 A | 1993.10.12 | AU 921114 A CA 2076140 A1 DE 69217299 T2 EP 531000 A1 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2004/014976

| | | |
|------------------|------------|------------------------------------------------------------------------------------------------|
| JP 4-342794 A | 1992.11.30 | AU 9188208 A CA 2056340 A1 EP 493928 A1 |
| JP 57-61090 A | 1982.04.13 | BR 8103902 A CA 1154774 A DE 3124152 A1 FR 2485032 A1 GB 2078757 A US 4306984 A |
| JP 2003-520892 A | 2003.07.08 | EP 1259580 A1 US 6362355 B1 WO 01/53439 A1 |

| | | | |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------|--------------------------------------------------------|--|
| A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl. C10M 159/12 //(C10M 159/12, 125:24, 133:16, 137:00, 139:00) C10N 30:00, 40:04, 60:00 | | | |
| B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl. C10M 159/12, 125/24, 133/16, 133/56, 137/00-137/16, 139/00 C10N 30:00, 40:04, 60:00 | | | |
| 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2004年 日本国登録実用新案公報 1994-2004年 日本国実用新案登録公報 1996-2004年 | | | |
| 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) | | | |
| C. 関連すると認められる文献 | | | |
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 | |
| X | J P 2002-105478 A (日石三菱株式会社), 2002.04.10 | 1-8 | |
| X | J P 2000-109868 A (出光興産株式会社), 2000.04.18 | 1-8 | |
| X | J P 2000-109870 A (出光興産株式会社 外1名), 2000.04.18 | 1-8 | |
| <input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。 | | | |
| * 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献 | | | |
| 国際調査を完了した日 20.12.2004 | | 国際調査報告の発送日 11.1.2005 | |
| 国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | | 特許庁審査官 (権限のある職員) 山本 昌広 電話番号 03-3581-1101 内線 3483 | |

| C (続き) 関連すると認められる文献 | | |
|---------------------|------------------------------------------------------------------|------------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| X | J P 2000-109871 A (出光興産株式会社 外1名), 2000.04.18 | 1-8 |
| X | J P 2000-109873 A (出光興産株式会社), 2000.04.18 | 1-8 |
| X | J P 2000-345181 A (出光興産株式会社 外2名), 2000.12.12 | 1-8 |
| X | J P 1-282296 A (エチル・ペトロリアム・アデITYブス・インコーポレーテッド), 1989.11.14 | 1-8 |
| X | J P 2-140299 A (エチル・ペトロリアム・アデITYブス・インコーポレーテッド), 1990.05.29 | 1-8 |
| X | J P 2-289691 A (エチル・ペトロリアム・アデITYブス・インコーポレーテッド), 1990.11.29 | 1-8 |
| X | J P 4-23892 A (日本石油株式会社), 1992.01.28 | 1-8 |
| X | J P 5-186788 A (エチル・ペトロリアム・アデITYブス・インコーポレーテッド), 1993.07.27 | 1-8 |
| X | J P 7-316578 A (エチル・コーポレーション), 1995.12.05 | 1-8 |
| X | J P 5-98282 A (エチル・ペトロリアム・アデITYブス・インコーポレーテッド), 1993.04.20 | 1-8 |
| X | J P 5-263090 A (エチル・ペトロリアム・アデITYブス・インコーポレーテッド), 1993.10.12 | 1-8 |
| X | J P 4-342794 A (エチル・ペトロリアム・アデITYブス・インコーポレーテッド), 1992.11.30 | 1-8 |

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|----------------------------------------------------------|------------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| X | JP 57-61090 A (シェブロン・リサーチ・コンパニー) , 1982. 04. 13 | 1-8 |
| X | JP 2003-520892 A (ザ ルブリゾル コーポレイション) , 2003. 07. 08 | 1-8 |

| | | |
|------------------|--------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| JP 2002-105478 A | 2002. 04. 10 | US 2002/0072478 A1 US 2003/0220206 A1 |
| JP 2000-109868 A | 2000. 04. 18 | ファミリーなし |
| JP 2000-109870 A | 2000. 04. 18 | ファミリーなし |
| JP 2000-109871 A | 2000. 04. 18 | ファミリーなし |
| JP 2000-109873 A | 2000. 04. 18 | ファミリーなし |
| JP 2000-345181 A | 2000. 12. 12 | EP 1057884 A1 US 6303546 B1 |
| JP 1-282296 A | 1989. 11. 14 | AU 8931109 A CA 1313860 C DE 68900349 T2 EP 333371 A1 US 4855074 A |
| JP 2-140299 A | 1990. 05. 29 | AU 8942420 A CA 1336184 C DE 68901901 T2 EP 359522 A1 US 4857214 A |
| JP 2-289691 A | 1990. 11. 29 | AU 9049958 A CA 2009398 A1 DE 69001079 T2 EP 384639 A1 ES 2046688 T3 US 5164103 A US 5198133 A US 5256324 A US 5389273 A US 5439606 A |
| JP 4-23892 A | 1992. 01. 28 | ファミリーなし |
| JP 5-186788 A | 1993. 07. 27 | CA 2068624 A1 GB 2257158 A US 5817605 A |

| | | |
|------------------|--------------|------------------------------------------------------------------------------------------------|
| JP 7-316578 A | 1995. 12. 05 | AU 9520087 A CA 2148975 A1 EP 683220 A2 |
| JP 5-98282 A | 1993. 04. 20 | AU 9188212 A CA 2056320 A1 DE 69103390 T2 EP 492934 A1 |
| JP 5-263090 A | 1993. 10. 12 | AU 9221114 A CA 2076140 A1 DE 69217299 T2 EP 531000 A1 |
| JP 4-342794 A | 1992. 11. 30 | AU 9188208 A CA 2056340 A1 EP 493928 A1 |
| JP 57-61090 A | 1982. 04. 13 | BR 8103902 A CA 1154774 A DE 3124152 A1 FR 2485032 A1 GB 2078757 A US 4306984 A |
| JP 2003-520892 A | 2003. 07. 08 | EP 1259580 A1 US 6362355 B1 WO 01/53439 A1 |